JP 2004-262761 A 2004.9.24

(19) 日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2004-262761 (P2004-262761A)

(43) 公開日 平成16年9月24日 (2004.9.24)

| | | | (,, | | | | |
|---------------------------|--------------------------|-------------|---------|------|-------|------|----------|
| (51) Int.Cl. ⁷ | FI | | | | テー | マコード | (参考) |
| CO7C 211/54 | CO7C | 211/54 | | | 3 K (| 007 | |
| CO7C 211/58 | CO7C | 211/58 | | | 4 H (| 006 | |
| CO9K 11/06 | СОЭК | 11/06 69 | 0 | | | | |
| HO5B 33/14 | но5в | 33/14 | Α | | | | |
| HO5B 33/22 | но 5 В | 33/22 | D | | | | |
| | | 審查請求 未 | 請求 | 青水項 | の数 5 | ΟL | (全 32 頁) |
| (21) 出願番号 | 特願2003-7762 (P2003-7762) | (71) 出願人 00 | 0018364 | 6 | | | |
| (22) 出願日 | 平成15年1月16日 (2003.1.16) | <u>#</u> | 光興産 | 株式会 | 社 | | |
| | | 東 | 京都千 | 代田区 | 丸の内 | 3丁目 | 1番1号 |
| | | (74)代理人 10 | 0007873 | 2 | | | |
| | | 弁 | 理士 | 大谷 | 保 | | |
| | | (74) 代理人 10 | 0008176 | 5 | | | |
| | | 弁 | 理士 | 東平 | 正道 | | |
| | | (72) 発明者 川 | 村 久 | 幸 | | | |
| | | f f | 莱県袖 | ケ浦市 | 上泉1 | 280 | 番地 |
| | | Fターム (参考) | 3K007 | AB18 | CB04 | DB03 | |
| | | | 4H006 | AA01 | AB92 | | |
| | | | | | | | |
| | | 1 | | | | | |
| | | l | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |

(54) 【発明の名称】芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【課題】分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留りが向上する芳香族アミン誘導体及び有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】非対称な構造を有する新規な芳香族アミン誘導体、並びに陰極と腸極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前配芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式(1)で表される芳香族アミン誘導体。 (1)

A - L - B

(式中、Aは、

【化1】



で表されるジアリールアミノ基、Bは、

【化2】



で表されるジアリールアミノ基であって、Aェ¹ ~Aェ⁴ は、それぞれ独立に、置換 もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基である。ただし、AとBは同一ではない

Lは、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーレン基からなる連結基、又は、複 数の置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーレン基を単結合、酸素原子、硫黄原 子, 窒素原子又は飽和もしくは不飽和の核炭素数1~20の2価の脂肪族炭化水素基で結 合した連結基である。)

【請求項2】

陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されて いる有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、請 求項1に記載の芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する有機エレ クトロルミネッセンス素子。

【請求項3】

前記有機薄膜層が正孔輸送帯域を有し、該正孔輸送帯域が、請求項1に記載の芳香族アミ ン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する請求項2に記載の有機エレクトロル ミネッセンス素子。

【請求項4】

前記有機薄膜層が正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が、請求項1に記載の芳香族アミン派 導体を単独もしくは混合物の成分として含有する請求項2に記載の有機エレクトロルミネ ッセンス素子。

【請求項5】

前記正孔輸送層が、主成分として請求項1に記載の芳香族アミン誘導体を含有する請求項 2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発用は、新規な苦香族アミン誘導体及びそれを利用した有機エレクトロルミネッセンス 素子に関し、さらに詳しくは、分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留

10

20

りが向上する新規な芳香族アミン誘導体及びそれを利用した有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。

[0002]

【従来の技術】

有機エレクトロルミネッセンス素子(以下エレクトロルミネッセンスをELと略記するこ とがある)は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された 電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。 イーストマン・コダック社の C. W. Tang らによる積層型素子による低電圧駆動有機 E L素子の報告 (C. W. Tang, S. A. Vanslyke, アプライドフ イジックスレターズ (Applied Physics Letters), 51巻、9 13頁、1987年等)がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機 E L 素子に関す る研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス(8-ヒドロキシキノリノールアル ミニウム)を発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構 造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子を ブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した 励起子を閉じ込めること等が挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造として は、正孔輸送(注入)層、電子輸送発光層の2層型、又は正孔輸送(注入)層、発光層、 電子輸送(注入)層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入さ れた正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。 通常高温環境下で有機EL素子を駆動させたり、保管すると、発光色の変化、発光効率の 低下、駆動電圧の上昇、発光寿命の短時間化等の悪影響が生じる。これを防ぐためには正 孔輸送材料のガラス転移温度 (Tg) を高くする必要があった。そのために正孔輸送材料 の分子内に多くの芳香族基を有する必要があり(例えば、特許文献1の芳香族ジアミン誘 導体、特許文献2の芳香族縮合環ジアミン誘導体、特許文献3のテトラフェニルベンジジ ン化合物)、通常8~12個のベンゼン環を有する構造が好ましく用いられている。 しかしながら、分子内に多くの芳香族基を有すると、これらの正孔輪送材料を用いて蘿藦 を形成し、有機EL素子を作製する際に結晶化が起こりやすく、蒸着に用いるるつぼの出 口を塞いだり、結晶化に起因する薄膜の欠陥が発生し、有機EL素子の歩留り低下を招く などの問題が生じていた。

[0003]

【特許文献1】

米国特許4.720.432号明細書

【特許文献2】

米国特許5,061,569号明細書

【特許文献3】

特開平7-126615号公報

[0004]

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、前記の課題を解決するためなされたもので、分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留りが向上する新規な芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機EL素子を提供することを目的とする。

[0005]

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記目的を達成するために、 観意研究を重ねた結果、 下記一般式 (1) で 表される非対称な構造を有する新規な芳香族アミン誘導体を有機 E L 薬子用材料として用 い、 等に正孔輸送材料として用いると、前記の課題を解決することを見出し、本発明を完 成するに至った。

[0006]

すなわち、下記一般式 (1) で表される芳香族アミン誘導体を提供するものである。

A - L - B

(1)

10

(式中、Aは、 【化3】



で表されるジアリールアミノ基、 B は、 【化 4 】

-NAr³

で表されるジアリールアミノ基であって、Ar¹ ~Ar⁴ は、それぞれ独立に、置換 もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基である。ただし、AとBは同一ではない

Lは、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーレン基からなる連結基、又は、複数の置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリーレン基を単結合,酸素原子、硫黄原子、健素原子は飽和もしくは不飽和の核炭素数1~20の2価の脂肪族炭化水素基で結合した連結基である。)

[0007]

また、本発明は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄 腰層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前配芳 等にまたアミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する有機EL素子を提供するも のである。

[0008]

【発明の実施の形態】

本発明の芳香族アミン誘導体は、下記一般式 (1) で表される化合物からなるものである

 $A - L - B \tag{1}$

一般式 (1) において、AとBは同一ではない。すなわち、本発明の芳香族アミン化合物は、非対称な構造を有している。

[0009]

一般式(1)において、Aは、

[化5]

Ar¹, N—

で表されるジアリールアミノ基、Bは、

[化6]

10

30

20

20

50

$$-N$$
Ar³

で表されるジアリールアミノ基であって、A r 1 ~A r 4 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の核原子数 5 ~ 5 0 のアリール基である。 【0 0 1 0 】

Ar¹ ~Ar⁴ のアリール基としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナント リル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フ ェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ピフェニルイル基、3-ビフェニル イル基、4-ピフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3 ーイル基、 p ーターフェニルー 2 ーイル基、 m ーターフェニルー 4 ーイル基、 m ーターフ ェニルー3ーイル基、m-ターフェニルー2ーイル基、o-トリル基、m-トリル基、p - トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3 ーメチルー2-ナフチル基、4-メチルー1-ナフチル基、4-メチルー1-アントリル 基、4'ーメチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基 、フルオランテニル基、フルオレニル基、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリ ル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-イ ンドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル 基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル 基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソイ ンドリル基、7ーイソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンソフラニル 基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾ フラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニ ル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル 基、7-イソベンゾフラニル基、キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キ ノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3 ーイソキノリル基、4ーイソキノリル基、5ーイソキノリル基、6ーイソキノリル基、7 ーイソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基 、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル 基、4-カルパゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナ ンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナン スリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンス リジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、 3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1,7-フェナンスロ リン-2-イル基、1、7-フェナンスロリン-3-イル基、1、7-フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン-5 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン-6 - イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イ ル基、1、7-フェナンスロリン-10-イル基、1、8-フェナンスロリン-2-イル 基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、 1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1,8-フェナンスロリン-9-イル基、1,8-フェナンスロリン-10-イル基、1、9-フェナンスロリン-2-イル基、1、9-フ ェナンスロリン-3-イル基、1、9-フェナンスロリン-4-イル基、1、9-フェナ ンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロリン-6-イル基、1,9-フェナンス

ロリンー7-イル基、1、9-フェナンスロリン-8-イル基、1、9-フェナンスロリ ン-10-イル基、1,10-フェナンスロリン-2-イル基、1.10-フェナンスロ リンー3-イル基、1,10-フェナンスロリン-4-イル基、1,10-フェナンスロ リン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-1-イル基、2、9-フェナンスロリン - 3 - イル基、 2, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、 2, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イ ル基、2、9-フェナンスロリン-8-イル基、2、9-フェナンスロリン-10-イル 基、2、8-フェナンスロリン-1-イル基、2、8-フェナンスロリン-3-イル基、 8-フェナンスロリン-6-イル基、2、8-フェナンスロリン-7-イル基、2、8-フェナンスロリン-9-イル基、2、8-フェナンスロリン-10-イル基、2、7-フ ェナンスロリン-1-イル基、2,7-フェナンスロリン-3-イル基、2,7-フェナ ンスロリン-4-イル基、2、7-フェナンスロリン-5-イル基、2、7-フェナンス ロリンー6ーイル基、2、7ーフェナンスロリン-8-イル基、2、7-フェナンスロリ ン-9-イル基、2、7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジ ニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基 、2-フェノキサジニル其、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、 2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基 . 3-チエニル基、2-メチルビロール-1-イル基、2-メチルビロール-3-イル基 、 2 - メチルビロール - 4 - イル基、 2 - メチルピロール - 5 - イル基、 3 - メチルピロ ール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基 、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロビル) ピロールー1ーイル基、2ーメチルー1ーインドリル基、4ーメチル - 1 - インドリル基、2 - メチル-3 - インドリル基、4 - メチル-3 - インドリル基、 2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチル3 インドリル基、4-t-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。 これらの中で、好ましくはフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、フ ェナンスリル基、ピレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、フルオレニル基であ

[0011]

る。

ー般式 (1) において、Lは、 (I) 置換もしくは無置換の核原子数 $5\sim5$ 0 のアリーレン基からなる連結基、又は、 (II) 複数の置換もしくは無置換の核原子数 $5\sim5$ 0 のアリーレン基を (II-1) 単結合, (II-2) 酸素原子 (-O-) , (II-3) 硫黄原子 (-S-) , (II-4) 窒素原子 (-NH-,-NR-[Rは置換基]) 又は (II-5) 飽和もしくは不飽和の核炭素数 $1\sim2$ 0 の 2 価の脂肪族炭化水素基で結合した連結基である。

[0012]

前記(I)及び(II)における綾原子数 $5\sim50$ のアリーレン基としては、例えば、 1 , 4-7ェニレン基、 1 , 2-7ェニレン基、 1 , 3-7ェニレン基、 1 , 4-7 , 7 , 9 , 10-7 ントラニレン基、 1 , 1

[0013]

前記(II-5)における飽和もしくは不飽和の核炭素数1~20の2価の脂肪族炭化水素基としては、直鎖、分岐、環状のいずれであってもよく、例えば、メチレン基、エチレン基、イソプロピレン基、エチリデン基、シクロヘキシリデン基、アダマンチレン基等が挙げられる。

[0014]

[0015]

置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基の例としては、フェニル基、1-ナ フチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、 1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナント リル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタ セニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、 3 ービフェニルイル基、4 ービフェニルイル基、p ーターフェニルー4ーイル基、p ータ ーフェニルー3-イル基、p-ターフェニルー2-イル基、m-ターフェニルー4-イル 基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m - トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p- (2-フェニルプロピル) フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニ ルー4-イル基、フルオランテニル基、フルオレニル基、1-ピロリル基、2-ピロリル 基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジ ニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、 5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル 基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル 基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イ ソベンプフラニル基、4-イソベンプフラニル基、5-イソベンプフラニル基、6-イソ ベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、キノリル基、3-キノリル基、4-キノ リル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソ キノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソ キノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キ ノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルパゾリル基、2-カルパゾリル基、3 - カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル 基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基 、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、 9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-ア クリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1、7 - フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン-3-イル基、1,7-フ ェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロリン-5-イル基、1,7-フェナ ンスロリン-6-イル基、1.7-フェナンスロリン-8-イル基.1.7-フェナンス ロリン-9-イル基、1,7-フェナンスロリン-10-イル基、1,8-フェナンスロ リン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン - 4 - イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリン-6

ーイル基、1、8-フェナンスロリン-7-イル基、1、8-フェナンスロリン-9-イ ル基、1、8-フェナンスロリン-10-イル基、1、9-フェナンスロリン-2-イル 基、1、9-フェナンスロリン-3-イル基、1、9-フェナンスロリン-4-イル基、 1,9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9-フェナンスロリン-8-イル基、1,9-フェナンスロリン-10-イル基、1,10-フェナンスロリン-2-イル基、1,10 - フェナンスロリン-3-イル基、1、10-フェナンスロリン-4-イル基、1、10 - フェナンスロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-1-イル基、2、9-フ ェナンスロリン-3-イル基、2,9-フェナンスロリン-4-イル基、2,9-フェナ ンスロリン-5-イル甚、2、9-フェナンスロリン-6-イル甚、2、9-フェナンス ロリン-7-イル基、2.9-フェナンスロリン-8-イル基、2.9-フェナンスロリ ン-10-イル基、2、8-フェナンスロリン-1-イル基、2、8-フェナンスロリン - 3 - イル基、 2, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、 2, 8 - フェナンスロリン - 5 ーイル基、2、8-フェナンスロリン-6-イル基、2、8-フェナンスロリン-7-イ ル基、2、8-フェナンスロリン-9-イル基、2、8-フェナンスロリン-10-イル 基、2、7-フェナンスロリン-1-イル基、2、7-フェナンスロリン-3-イル基、 2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2,7-フェナンスロリン-8-イル基、2,7-フェナンスロリンー9ーイル基、2、7ーフェナンスロリンー10ーイル基、1ーフェナ ジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェ ノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジ ニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オ キサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、 2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロー ルー3-イル基、2-メチルピロールー4-イル基、2-メチルピロールー5-イル基、 3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロー ル-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル 基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル 基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-プチル1-インドリル基、2 - t - ブチル3-インドリル基、4-t-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。 [0016]

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、 プロピル基、イソプロピル基、nーブチル基、sーブチル基、イソブチル基、tーブチル 基、nーペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメ チル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル 基、1、2-ジヒドロキシエチル基、1、3-ジヒドロキシイソプロピル基、2、3-ジ ヒドロキシー t ーブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、 1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソプチル基、1、2-ジクロロ エチル基、1,3-ジクロロイソプロビル基、2,3-ジクロロー t - ブチル基、1,2 . 3 - トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1 - ブロモエチル基、2 - ブロモエチル 基、2-ブロモイソブチル基、1、2-ジブロモエチル基、1、3-ジブロモイソプロピ ル基、2, 3-ジプロモーt-ブチル基、1, 2, 3-トリプロモプロピル基、ヨードメ チル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソプチル基、1,2-ジョードエチル基、1、3-ジョードイソプロピル基、2.3-ジョード-t-プチル基 、1、2、3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミ ノエチル基、2-アミノイソブチル基、1,2-ジアミノエチル基、1,3-ジアミノイ ソプロピル基、2,3-ジアミノーt-ブチル基、1,2,3-トリアミノプロピル基、 シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、

1, $2-\vec{\upsilon}$ シアノエチル基、1, $3-\vec{\upsilon}$ シアノイソプロピル基、2, $3-\vec{\upsilon}$ シアノー $t-\vec{\tau}$ チル基、1, 2, 3-kリシアノプロピル基、1 トロスチル基、1 ーニトロエチル基、2 ーニトロイソプチル基、1, $2-\vec{\upsilon}$ ニトロエチル基、1, $3-\vec{\upsilon}$ ニトロイソプロピル基、2, $3-\vec{\upsilon}$ ニトロイソプロピル基、2, $3-\vec{\upsilon}$ ニトロー $t-\vec{\upsilon}$ チル基、1, 2 , 3-kリニトロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4 ーメチルシクロヘキシル基、1 ーアダマンチル基、2 ーアダマンチル基、1 ーノルボルニル基、2 ーノルボルニル基等が挙げられる。

[0017]

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基は-OYで表される基であり、Yの 例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、nープチル基、sーブ チル基、イソブチル基、 t ープチル基、 n ーペンチル基、 n ー ヘキシル基、 n ー ヘプチル 基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエ チル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒド ロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシーt-ブチル基、1,2,3-トリヒドロ キシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロ ロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル基、1,3-ジクロロイソプロピル基、2,3 -ジクロロー t - ブチル基、1, 2, 3 - トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-プロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1,2-ジブロモエチ ル基、1、3-ジブロモイソプロビル基、2、3-ジプロモーt-ブチル基、1、2、3 ートリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、 2-ヨードイソブチル基、1,2-ジョードエチル基、1,3-ジョードイソプロピル基 、2, 3-ジョード-t-ブチル基、1, 2, 3-トリョードプロピル基、アミノメチル 基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソプチル基、1,2-ジア ミノエチル基、1,3-ジアミノイソプロピル基、2,3-ジアミノーtーブチル基、1 . 2. 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエ チル基、2-シアノイソプチル基、1,2-ジシアノエチル基、1,3-ジシアノイソプ ロピル基、2,3-ジシアノーt-ブチル基、1,2,3-トリシアノプロピル基、ニト ロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1、3-ジニトロイソプロピル基、2、3-ジニトロー t - ブチ ル基、1、2、3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

[0019]

置換もしくは無置換の炭素数5~50のアリールオキシ基は一〇Y'と表され、Y'の例としてはフェニル基、1 - ナフチル基、2 - ナフチル基、1 - アントリル基、2 - フェナントリル基、3 - フェナントリル基、3 - フェナ

ントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル 基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフ ェニルー4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、 m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2 - イル基、 o - トリル基、m - トリル基、p - トリル基、p - t - ブチルフェニル基、p - (2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1 - ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"t ーブチルーp ーターフェニルー4 ーイル基、2 ーピロリル基、3 ーピロリル基、ピラジ ニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、 3 ーインドリル基、4 ーインドリル基、5 ーインドリル基、6 ーインドリル基、7 ーイン ドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラ ニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニ ル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キ ノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キ ノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキ ノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキ サリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基 、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、 6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9 - フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アク リジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1.7-フェナンスロリンー2ーイル基、1、7ーフェナンスロリンー3ーイル基、1、7ーフェ ナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロリン-5-イル基、1,7-フェナン スロリンー6-イル基、1、7-フェナンスロリン-8-イル基、1、7-フェナンスロ リン-9-イル基、1、7-フェナンスロリン-10-イル基、1、8-フェナンスロリ ン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリン-6-イル基、1,8-フェナンスロリン-7-イル基、1,8-フェナンスロリン-9-イル 基、1、8-フェナンスロリン-10-イル基、1、9-フェナンスロリン-2-イル基 、1、9-フェナンスロリンー3-イル基、1、9-フェナンスロリンー4-イル基、1 ,9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロリン-6-イル基、1,9 - フェナンスロリン- 7 - イル基、1、9 - フェナンスロリン-8 - イル基、1、9 - フ ェナンスロリン-10-イル基、1、10-フェナンスロリン-2-イル基、1、10-フェナンスロリンー3ーイル基、1、10-フェナンスロリンー4ーイル基、1、10-フェナンスロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-1-イル基、2,9-フェ ナンスロリン-3-イル基、2、9-フェナンスロリン-4-イル基、2、9-フェナン スロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-6-イル基、2、9-フェナンスロ リンー7ーイル基、2、9ーフェナンスロリン-8-イル基、2、9ーフェナンスロリン - 10-イル基、2,8-フェナンスロリン-1-イル基、2,8-フェナンスロリン-3-イル基、2,8-フェナンスロリン-4-イル基、2,8-フェナンスロリン-5-イル基、2、8-フェナンスロリン-6-イル基、2、8-フェナンスロリン-7-イル 基、2、8-フェナンスロリン-9-イル基、2、8-フェナンスロリン-10-イル基 、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2 ,7-フェナンスロリン-4-イル基、2,7-フェナンスロリン-5-イル基、2,7 - フェナンスロリンー 6 - イル基、 2 , 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、 2 , 7 - フ

.

30

50

ェナンスロリン -9 - イル基、2 , 7 - フェナンスロリン -1 0 - イル基、1 - フェナジニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、2 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル基、2 - オナルビロール 2 - イル基、2 - メチルビロール 2 - イル基、2 - スチルビロール 2 - ステルビロール 2

[0020]

置換もしくは無置換の炭素数5~50のアリールチオ基は-SY"と表され、Y"の例と してはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリ ル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナン トリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナ フタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基 、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ピフェニルイル基、p-ターフェ ニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m - ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、oートリル基、mートリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t ープチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニ ル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3 ーインドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インド リル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イ ソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フ リル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベ ンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニ ル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル 基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノ リル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノ リル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノ リル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサ リニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カ ルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、 2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6 ーフェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリ ジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1,7-フ ェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン-3-イル基、1,7-フェナ ンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロリン-5-イル基、1,7-フェナンス ロリンー6-イル基、1,7-フェナンスロリン-8-イル基、1,7-フェナンスロリ ン-9-イル基、1,7-フェナンスロリン-10-イル基、1,8-フェナンスロリン - 2 - イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4 - イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリン-6-イ

ル基、1、8-フェナンスロリン-7-イル基、1、8-フェナンスロリン-9-イル基 、1、8-フェナンスロリン-10-イル基、1、9-フェナンスロリン-2-イル基、 1. 9-フェナンスロリン-3-イル基、1. 9-フェナンスロリン-4-イル基、1.9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロリン-6-イル基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9-フェナンスロリン-8-イル基、1,9-フェ ナンスロリン-10-イル基、1,10-フェナンスロリン-2-イル基、1,10-フ ェナンスロリン-3-イル基、1、10-フェナンスロリン-4-イル基、1、10-フ ェナンスロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-1-イル基、2、9-フェナ ンスロリン-3-イル基、2,9-フェナンスロリン-4-イル基、2,9-フェナンス ロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-6-イル基、2,9-フェナンスロリ ン-7-イル基、2、9-フェナンスロリン-8-イル基、2、9-フェナンスロリン-10-イル基、2、8-フェナンスロリン-1-イル基、2、8-フェナンスロリン-3 ーイル基、2、8-フェナンスロリンー4-イル基、2、8-フェナンスロリンー5-イ ル甚、2、8-フェナンスロリンー6-イル基、2、8-フェナンスロリン-7-イル基 、2、8-フェナンスロリン-9-イル基、2、8-フェナンスロリン-10-イル基、 2. 7 - 7 エナンスロリンー 1 - 7 ル基、 2 、 7 - 7 エナンスロリンー 3 - 7 ル基、 2 、 7-フェナンスロリンー4-イル基、2、7-フェナンスロリンー5-イル基、2、7-フェナンスロリンー6-イル基、2,7-フェナンスロリン-8-イル基、2,7-フェ ナンスロリン-9-イル基、2,7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニ ル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フ ェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサ ジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4 ーオキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリ ル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチ ルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロールー4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロールー1-イル基、2 - メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インド リル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブ チル1-インドリル基、2-t-ブチル3-インドリル基、4-t-ブチル3-インドリ ル基等が挙げられる。

[0021]

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシカルボニル基は-COOZと表され、 Zの例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、tーブチル基、nーペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチ ル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシ エチル基、2-ヒドロキシイソプチル基、1、2-ジヒドロキシエチル基、1、3-ジヒ ドロキシイソプロピル基、2、3-ジヒドロキシーt-ブチル基、1、2、3-トリヒド ロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-ク ロロイソプチル基、1、2-ジクロロエチル基、1、3-ジクロロイソプロピル基、2、 3 - ジクロロー t - ブチル基、1, 2, 3 - トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1 -ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1,2-ジブロモエ チル基、1、3-ジブロモイソプロピル基、2、3-ジブロモーtーブチル基、1、2、 3-トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基 . 2-ヨードイソプチル基、1. 2-ジョードエチル基、1. 3-ジョードイソプロピル 基、 2、 3 - ジョードー t - ブチル基、 1、 2、 3 - トリョードプロピル基、アミノメチ ル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1,2-ジ アミノエチル基、1、3-ジアミノイソプロピル基、2、3-ジアミノー t - ブチル基、 1. 2. 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノ エチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノーt-プチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、1, 2, 3-ドリンステル基、1, 2, 3-ジニトロスチル基、1, 2, 3-ジニトロイソプロピル基、1, 2, 3-ジニトロー1ビル基等が挙げられる。 [0022]

置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基で置換されたアミノ基は一NPQと 表わされ、P、Qの例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-ア ントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナ ントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1 ーナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピ レニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェ ニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ター フェニルー2-イル基、m-ターフェニルー4-イル基、m-ターフェニルー3-イル基 、m-ターフェニルー2ーイル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p- t ープチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフ チル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビ フェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、 3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル 基、2ーインドリル基、3ーインドリル基、4ーインドリル基、5ーインドリル基、6ー インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル 基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル 基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基 、5ーイソベンゾフラニル基、6ーイソベンゾフラニル基、7ーイソベンゾフラニル基、 2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、 7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソ キノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソ キノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1 30 ーカルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1 - フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フ ェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-ア クリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-ア クリジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン-3 - イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イ ル基、1,7-フェナンスロリン-6-イル基、1,7-フェナンスロリン-8-イル基 、1、7-フェナンスロリンー9-イル基、1、7-フェナンスロリンー10-イル基、 1,8-フェナンスロリン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロリンー 6 - 4ル 基、 1 、 8 - 7ェナンスロリンー 7 - 4ル 基、 1 、 8 - 7ェ ナンスロリン-9-イル基、1,8-フェナンスロリン-10-イル基、1,9-フェナ ンスロリン-2-イル基、1,9-フェナンスロリン-3-イル基、1,9-フェナンス ロリン-4-イル基、1,9-フェナンスロリン-5-イル基、1,9-フェナンスロリ ン-6-イル基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9-フェナンスロリン-8-イル基、1,9-フェナンスロリン-10-イル基、1,10-フェナンスロリン-2-イル基、1,10-フェナンスロリン-3-イル基、1,10-フェナンスロリン-4-イル基、1,10-フェナンスロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-1 ーイル基、2、9-フェナンスロリン-3-イル基、2、9-フェナンスロリン-4-イ 50

ル基、2、9-フェナンスロリン-5-イル基、2、9-フェナンスロリン-6-イル基 、2、9-フェナンスロリン-7-イル基、2、9-フェナンスロリン-8-イル基、2 9-フェナンスロリン-10-イル基、2,8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2.8-フェナンスロリン-4-イル基、2.8-フェナンスロリン-5-イル基、2、8-フェナンスロリン-6-イル基、2、8-フェ ナンスロリン-7-イル基、2、8-フェナンスロリン-9-イル基、2、8-フェナン スロリン-10-イル基、2,7-フェナンスロリン-1-イル基、2,7-フェナンス ロリンー3-イル基、2、7-フェナンスロリン-4-イル基、2、7-フェナンスロリ ン-5-イル基、2、7-フェナンスロリン-6-イル基、2、7-フェナンスロリン-8-イル基、2、7-フェナンスロリン-9-イル基、2、7-フェナンスロリン-10 ーイル基、1ーフェナジニル基、2ーフェナジニル基、1ーフェノチアジニル基、2ーフ ェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサ ジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基 、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリ ル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、 2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロー ルー4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、 3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロー $\nu - 5 - 4 \nu$ 甚、 $2 - t - \vec{J} + \vec$ ピロールー1-イル基、2-メチルー1-インドリル基、4-メチルー1-インドリル基 、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチル3-インドリル基、4 - t - ブチル3-インドリル基等が挙げられる。P、Qはそれぞれ同一であっても異なっ ていても良い。

[0023]

前配置換基は、置換基同士で環を形成していてもよく、環を形成する2価基の例としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタンー2,2′ージイル基、ジフェニルプロパンー4,4′ージイル基等が挙げられる。

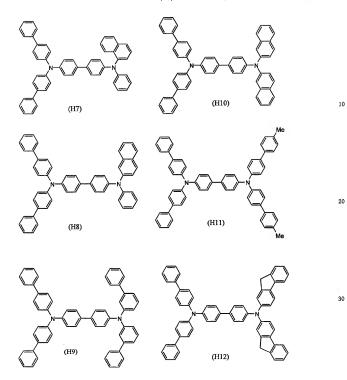
ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。

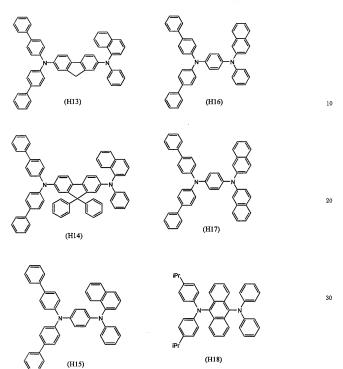
[0024]

本発明の一般式(1)で表される芳香族アミン誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。なお、Meはメチル基、iPrはイソプロピル基を示す。

【化7】

[0025] [化8]





[0028]

次に、本発明の有機EL素子について説明する。

本発明の有機EL素子は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からな る有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が 、前記芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する。

本祭明の有機EL素子は、前記有機薄膜層が正孔輸送帯域を有し、該正孔輸送帯域が、本 発明の芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有すると好ましく、また 、前記有機薄膜層が正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が、本発明の芳香族アミン誘導体を 単独もしくは混合物の成分として含有するとさらに好ましい。さらに、前記正孔輸送層が 、主成分として本発明の芳香族アミン誘導体を含有すると好ましい。

[0029]

以下、本発明の有機EL素子の素子構成について説明する。

(1) 有機 E L 素子の構成

本祭明の有機EL素子の代表的な素子構成としては、

- (1) 陽極/発光層/陰極
- (2) 陽極/正孔注入層/発光層/陰極
- 陽極/発光層/電子注入層/陰極 (3)
- (4) 陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極
- (5) 陽極/有機半導体層/発光層/陰極
- (6) 陽極/有機半導体層/電子障壁層/発光層/陰極
- (7) 陽極/有機半導体層/発光層/付着改善層/陰極
- 陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子注入層/跨極 (8)
- (9) 陽極/絶縁層/発光層/絶縁層/陰極
- (10)陽極/無機半導体層/絶縁層/発光層/絶縁層/陰極
- (11) 陽極/有機半導体層/絶縁層/発光層/絶縁層/陰極
- (12)陽極/絶縁層/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/絶縁層/降極

50

(13) 陽極/絶縁層/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子注入層/陰極などの標浩を挙げることができる。

これらの中で通常 (8) の構成が好ましく用いられるが、これらに限定されるものでは ない。

本発明の芳香族アミン誘導体は、有機EL素子のどの有機薄膜層に用いてもよいが、発光 帯域又は正孔輸送帯域に用いることができ、好ましくは正孔輸送帯域、特に好ましくは正 孔輸送層に用いることにより、分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留 りが向上する。

本発明の芳香族アミン誘導体を、有機薄膜層に含有させる量としては、30~100モル %が好ましい。

[0030]

(2) 透光性基板

本発明の有機E L 素子は、透光性の基板上に作製する。ここでいう透光性基板は有機E L 素子を支持する基板であり、400~700 n m の可視領域の光の透過率が50%以上で平滑な基板が紆ましい。

具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰 ガラス、パリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウ ケイ酸ガラス、パリウムホウケイ酸ガラス、石炭等が挙げられる。またポリマー板として は、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファ イド、ポリサルフォン等を挙げることができる。

[0031]

(3) 陽極

本発明の有機 E L 素子の陽極 は、正孔を正孔輸送層 Z は発光層に注入する機能を有するものであり、4.5 e V 以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金 (ITO)、酸化錫 (NESA)、金、銀、白金、銅等が挙げられる。

陽極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させること により作製することができる。

このように発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 Ω / \Box 以下が好ましい。陽極の腹厚は材料にもよるが、通常 $10nm\sim1\mu$ m、好ましくは $10\sim200nm$ の範囲で選択される。

[0032]

(4) 発光層

有機EL素子の発光層は以下▲1▼~▲3▼の機能を併せ持つものである。

▲1▼注入機能;電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極 又は電子注入層より電子を注入することができる機能

▲2▼輸送機能;注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能

▲3▼発光機能;電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能

ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また、正 れと電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動 することが好ましい。

この発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB 法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は板相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB 法により形成された薄膜 (分子累積膜)とは蘋葉構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化 合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することに

10

20

30

よっても、発光層を形成することができる。

本発明においては、本発明の目的が損なわれない範囲で、所望により発光層に本発明の芳 香族アミン誘導体からなる発光材料以外の他の公知の発光材料を含有させてもよく、また 、本発明の芳香族アミン誘導体からなる発光材料を含む発光層に、他の公知の発光材料を 含む発光層を積層してもよい。

[0033]

(5) 正孔注入・輸送層(正孔輸送帯域)

正孔注入・輸送層は発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔 移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常 5.5 e V 以下と小さい。このような正孔注入・輸送層としては、より低い電界頻度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば 10^4 ~ 10^6 V/cmの電界印加時に、少なくとも 10^{-4} cm² V・秒であれば好ましい。

本発明の芳香族アミン誘導体を正孔輸送帯域に用いる場合、本発明の芳香族アミン誘導体 単独で正孔注入、輸送層を形成してもよく、他の材料と混合して用いてもよい。

本発明の芳香族アミン誘導体と混合して正孔注入、輸送層を形成する材料としては、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において正孔の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

[0034]

具体例としては、トリアゾール誘導体(米国特許3、112、197号明細書等参照)、 オキサジアゾール誘導体 (米国特許3,189,447号明細書等参照)、イミダゾール 誘導体(特公昭37-16096号公報等参照)、ポリアリールアルカン誘導体(米国特 許3,615,402号明細書、同第3,820,989号明細書、同第3,542,5 4 4 号明細書、特公昭 4 5 - 5 5 5 号公報、同 5 1 - 1 0 9 8 3 号公報、特開昭 5 1 - 9 3 2 2 4 号公報、 同 5 5 - 1 7 1 0 5 号公報、 同 5 6 - 4 1 4 8 号公報、 同 5 5 - 1 0 8 667号公報、同55-156953号公報、同 56-36656号公報等参照)、 ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体(米国特許第3、180、729号明細書、同第 4. 278. 746号明細書、特開昭55-88064号公報、間55-88065号公 報、 同 4 9 - 1 0 5 5 3 7 号公報、 同 5 5 - 5 1 0 8 6 号公報、 同 5 6 - 8 0 0 5 1 号公 報、 同 5 6 - 8 8 1 4 1 号公報、 同 5 7 - 4 5 5 4 5 号公報、 同 5 4 - 1 1 2 6 3 7 号公 報、同55-74546号公報等参照)、フェニレンジアミン誘導体(米国特許第3,6 15.404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同4 7-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、 同54-119925号公報等参照)、アリールアミン誘導体(米国特許第3,567, 450号明細書、同第3,180,703号明細書、同第3,240,597号明細書、 同第3,658,520号明細書、同第4,232,103号明細書、同第4,175, 9 6 1 号明細書、 同第 4 . 0 1 2 . 3 7 6 号明細書、 特公昭 4 9 - 3 5 7 0 2 号公報、 同 39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公 報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書等参照)、アミ ノ置換カルコン誘導体 (米国特許第3,526,501号明細書等参照)、オキサゾール 誘導体(米国特許第3、257、203号明細書等に開示のもの)、スチリルアントラセ ン誘導体(特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3,717,462号明細 書、特開昭 5 4 - 5 9 1 4 3 号公報、同 5 5 - 5 2 0 6 3 号公報、同 5 5 - 5 2 0 6 4 号 公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公 報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン 誘導体 (特開昭 6 1 - 2 1 0 3 6 3 号公報、同第 6 1 - 2 2 8 4 5 1 号公報、同 6 1 - 1 4 6 4 2 号公報、同 6 1 - 7 2 2 5 5 号公報、同 6 2 - 4 7 6 4 6 号公報、同 6 2 - 3 6 674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-934 5 5 号公報、同 6 0 - 9 4 4 6 2 号公報、同 6 0 - 1 7 4 7 4 9 号公報、同 6 0 - 1 7 5

20

30

052号公報等参照)、シラザン誘導体(米国特許第4,950,950号明細書)、ポリシラン系(特開平2-204996号公報)、アニリン系共重合体(特開平2-282 263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げることができる。

[0035]

正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物 (特開昭 6 3 - 2 9 5 6 9 6 5 号公報等に関示のもの)、芳香族第三級アミン化合物及び3 3 号少ルアミン化合物 (米国特許第4,127,412号明細書、2 号明細書、2 号の 3 4 号公報、同5 4 - 5 8 4 4 5 号公報、同5 4 - 1 4 9 6 3 4 号公報、同5 6 - 1 1 9 1 3 2 号公報、同6 5 - 7 9 4 5 0 号公報、同6 5 - 1 4 4 2 5 0 号公報、同5 6 - 1 1 9 1 3 2 号公報、同6 1 - 2 9 5 5 5 8 号公報、同6 1 - 9 8 3 5 3 分公報、同6 3 - 2 9 5 6 9 5 号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

さらに、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリディン系化合物の他、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができる。

[0036]

正孔注入・輸送層は本発明の芳香族アミン誘導体を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入・輸送層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5nm~5μmである。この正孔注入・輸送層は、正孔輸送帯域に本発明の芳香族アミン誘導体を含有していれば、上述した材料の一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよく、前記正孔注入・輸送層と規制機の化合物からなる正孔注入・輸送層を積層したものであってもよい。

また、発光層への正孔注入又は電子注入を助ける層として有機半導体層を設けてもよく、 10^{-10} S/c m以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや特別ゴマー、含アリールアミンオリゴマー等の導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマー等の導電性オンドリマー等を用いることができる。

[0037]

(6) 電子注入層

電子注入層・輸送層は、発光層への電子の注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、電子移動度が大きく、また、付着改善層は、この電子注入層の中で特に陰極との付着性がよい材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキ

ノリン又はその誘導体の金属錯体が好適である。

この8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシン (一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられ、例えばトリス (8-キノリノール)アルミニウム (Alq)を電子注入材料として用いることができる。

また、オキサジアゾール誘導体としては、以下の一般式で表される電子伝達化合物が挙げ られる。

[0038]

【化11】

$$Ar^{\frac{1^{2}}{2}} \stackrel{N-N}{\bigcirc} Ar^{\frac{2^{2}}{2}} Ar^{\frac{8^{2}}{2}} \stackrel{N-N}{\bigcirc} Ar^{\frac{2^{2}}{2}} O - Ar^{\frac{8^{2}}{2}} \stackrel{N-N}{\bigcirc} Ar^{\frac{8^{2}}{2}} Ar^{\frac{8^{2}}{2}} O - Ar^{\frac{8^{2}}{2}} O$$

(式中A r 1 ', A r 2 ', A r 3 ', A r 6 ', A r 6 ', A r 9 'はそれぞれ置換もしくは無置換のアリール基を示し、それぞれ互いに同一であっても異なっていてもよい。また、A r 4 ', A r 7 ', A r 8 'は置換もしくは無置換のアリーレン基を示し、それぞれ同一であっても異なっていてもよい)

[0039]

ここでアリール基としては、フェニル基、ピフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基 、ピレニル基が挙げられ、アリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ピフェ ニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、 電換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基又はシアノ 基等が挙げられる。この電子伝達化合物は薄膜形成性のものが好ましい。

この電子伝達性化合物の具体例としては下記のものを挙げることができる。

[0040]

【化12】

[0041]

また、本発明の有機E L 案子は、電子を輸送する領域又は陰極と有機薄膜層の界面領域に 、選元性ドーパントを含有していてもない。ここで、選元性ドーパントとは、電子輸送性 化合物を還元ができる物質と定義される。したがって、一定の選元性を有するものであれ は、様々なものが用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、ア

30

50

ルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカ リ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物又は希土類金属のハロゲン化物、アルカ リ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体、希土類金属の有機錯体からなる群から 選択される少なくとも一つの物質を好適に使用することができる。

[0042]

好ましい還元性ドーパントの具体例としては、Na(仕事関数:2.36 e V)、K(仕事関数:2.16 e V)及びCs(仕事関数:10 e V)及びCs(仕事関数:10 e V)、Rb(仕事関数:2.16 e V)及びCs(仕事関数:10 e V)、Rb(仕事関数:2.9 e V)、Rb(仕事関数:2.9 e V)、及びBa(仕事関数:2.5 e V)、及びBa(仕事関数:2.5 e V)からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ土類金属が挙げられる仕事関数が2.9 e V以下のものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、K、R b D 及びCs からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ土類金属が挙げられる仕事関数が2.9 e V以下のものが特に好ましい。これらのラち、より好ましてルカースについたが表していたのアルカリ金属は、特に選元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機E L 漢子性ドーパントとして、これら2 を形したのよた、仕事関数が2.9 e V以下の還元性ドーパントとして、これら2 を別上のアルカリ金属の組合わせも好ましく、所に、Csを含んだ組み合わせ、例えば、CsとNa、CsとK、CsとRb又はCsとNaとKとの組み合わせであることが好ましい。Csを組み合わせて含むことにより、還元能力を効率的に発揮することができ、電子注入域への添加により、有機E L 漢子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

[0043]

本発明の有機E L 素子は、陰極と有機層の間に絶縁体や半導体で構成される電子注入層をさらに設けてもよい。これにより、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上カリナ 電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上カリナ 電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上カリナ 型類金属カルコゲナイド、アルカリ金属カルコゲナイドを使用するのが好ましい。最小のおいた。電子に向上させることができるため好ましい。具体的に、S、Na2 Se及びNaのハロゲンとしては、例えば、Li2 O、LiO、Na2 Se及びNaのハロゲライドとしては、例えば、Li2 O、LiO、Na2 Se及びNaのハロゲライドとしては、例えば、Li2 O、KFとしては、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、CaO、BaO、アウン化物としては、例えば、LiF、NaF、KF、LiC1、KC1及びNaC1を呼ばられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、CaF、SaF、SrF2 、SrF2 、 SrF2 、 SuFF2 SuFF2

[0044]

また、電子輸送層を構成する半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窓化物又は酸化蜜化物等の一種単独又工種以上の組み合わせが挙げある。また、電子輸送層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子輸送層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属のルロゲン化物等が挙げられる。

[0045]

(7)陰極

陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入するため、仕事関数の小さい(4eV 以下)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いら れる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム・カリウム合金、 マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。

この陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。

ここで発光層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。

また、陰極としてのシート抵抗は数百 Ω / \square 以下が好ましく、膜厚は通常 $10nm\sim1\mu$ m、好ましくは $50\sim200nm$ である。

[0046]

(8) 絶縁層

有機EL素子は超薄膜に電界を印可するために、リークやショートによる画素欠陥が生じやすい。これを防止するために、一対の電極間に絶縁性の薄膜層を挿入することが好ましい。

絶縁層に用いられる材料としては例えば酸化アルミニウム、弗化リチウム、酸化リチウム 、弗化セ シウム、酸化セシウム、酸化マグネシウム、弗化マグネシウム、酸化カルシ ウム、弗化カルシウム、窒化アルミニウム、酸化チタン、酸化珪素、酸化ゲルマニウム、 窒化珪素、窒化ホウ素、酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化パナジウム等が挙げられ 、これらの混合物や積層物を用いてもよい。

[0047]

(9) 有機 E L 素子の製造方法

以上例示した材料及び形成方法により腸極、発光層、必要に応じて正孔注入・輸送層、及び必要に応じて電子注入・輸送層を形成し、さらに陰極を形成することにより有機EL素子を作製することができる。また陰極から腸極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

以下、透光性基板上に陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。

まず、適当な透光性基板上に腸板材料からなる薄膜を 1μ m以下、好ましくは $10\sim20$ 0 n m の範囲の護厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して腸極を作製する。次に、この腸極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述でたように真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、L B 法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条機で開ける化合物(正孔注入層の材料)、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸煮源湿度 $50\sim450$ $\mathbb C$ 、真空度 $10^{-7}\sim10^{-3}$ 10^{-7}

[0048]

次に、正孔注入層上に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有機発光材料を用いて真空 蓋着法、スパックリング、スピンコート法、キャスト法等の方法により有機発光材料を薄 腰化することにより形成できるが、均質な酸が得られやすく、かつピンホールが発生しに くい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形 成する場合、その蒸着条件は使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じ ような条件範囲の中から選択することができる。

次に、この発光層上に電子往入層を設ける。正孔往入層、発光層と同様、均質な膜を得る 必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は正孔注入層、発光層と同 様の条件範囲から選択することができる。

本発明の芳香族アミン誘導体は、発光帯域や正孔輸送帯域のいずれの層に含有させるかに よって異なるが、真空蒸着法を用いる場合は他の材料との共蒸着をすることができる。ま た、スピンコート法を用いる場合は、他の材料と混合することによって含有させることが できる。

10

20

30

最後に陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。

陰極は金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しか し下地の有機物層を製膜時の損傷から守るためには真空蒸着法が好ましい。

この有機EL素子の作製は一回の真空引きで一貫して關極から陰極まで作製することが好ましい。

[0049]

本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピンコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子にいる。前配一般式(1)で示される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸落法、分子線蒸蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、ネーマングは、パーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機 E L 素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎると ピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪く なるため、通常は数 n m から 1 μ m の範囲が好ましい。

なお、有機 E L 素子に直流電圧を印加する場合、 勝極を + 、 陰極を - の極性にして、 5 ~ 4 0 V の電圧を印加すると発光が 報測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。 さらに交流電圧を印加した場合には 腸極が + 、 陰極が - の 極性になった時のみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。

[0050]

【実施例】

次に、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってな んら限定されるものではない。

実施例1 (N, N-ジフェニル-1-アミノ-N, N-ジーピフェニリル-4-アミノベンゼン (H1) の合成)

(1) ジー4-ビフェニリルアミンの合成

100 ミリリットルの三つロフラスコに 4 - プロモビフェニル 10.0g (東京化成社品)、t-プトキシナトリウム 4.32g(和光純素社製)、酢酸パラジウム 42mg(和光純素社製)を入れた。さらに攪拌子を入れ、フラスコの両側にラバーキャップをセットし、中央の口に還満用蛇管、その上に三方コックとアルゴンガスを封入した風船をセットし、系内を真空ポンプを用いて3回、風船内のアルゴンガスで置換した。

次に、脱水トルエン 60 ミリリットル (和光純薬社製)、ペンジルアミン 2. 0 4 ミリリットル (東京 化成社製)、トリスー t - ブチルホスフィン 1 6 9 μ リットル (アルドリッチ社製、2. 2 2 m o 1 / リットルトルエン溶液)をシリンジでラパーセプタムを通して加え、5 分間密担で攪拌した。

次にフラスコをオイルパスにセットし、溶液を機件しながら徐々に 120℃まで昇温した。7時間後、オイルパスからフラスコを外し反応を終了させ、アルゴン雰囲気下、12時間放置した。

反応溶液を分液ロートに移し、ジクロロメタン 300ミリリットルを加えて沈酸物を溶解させ、飽和食塩水60ミリリットルで洗浄後、有機層を無水炭酸カリウムで乾燥した。 炭酸カリウムを濾別して得られた有機層の溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン 20 0ミリリットル、エタノール40ミリリットルを加え、乾燥管を付けて80℃に加熱し、 残渣を完全に溶解した。その後12時間放置し、室祖まで除冷することにより再結晶化さ

析出した結晶を濾別し、60℃で真空乾燥することにより6.73g のN, N-ジー(4-ピフェニリル) -ベンジルアミンを得た。

50

次に、フラスコに攪拌子を入れた後、水素ガス 2 リットルが充填された風船を装着した三 方コックをフラスコに取り付け、真空ポンプを用いてフラスコ系内を水素ガスで 1 0 回置 換した。減った水素ガスを新たに充填し、水素ガスの容積を再び 2 リットルにした後、室 温で激しく溶液を攪拌した。 3 0 時間攪拌後、ジクロロメタン 1 0 0 ミリリットルを加 え、触媒を濾別した。

次に、得られた溶液を分液ロートに移し、炭酸水素ナトリウム飽和水溶液50ミリリットルで洗浄後、有機層を分別し、無水炭酸カリウムで乾燥した。濾過後、溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン50ミリリットルを加え、再結晶化させた。析出した結晶を濾別し、50℃で真空乾燥することにより0.99g のジー4ーピフェニリルアミンを得た。 【0051】

(2) 4-ブロモーN、N-ジーピフェニリルアニリンの合成

アルゴン気流下、上記 (1) で得られたジー4ーピフェニリルアミン10g 、1, 4 ー ジブロモペンゼン7. 3g (東京化成社製) 、t ープトキシナトリウム3g (広島和光社製) 、ピス (トリフェニルホスフィン) 塩化パラジウム (II) 0. 5g (東京化成社製) 及びキシレン 500ミリリットルを入れ、 130℃にて24時間反応した。

冷却後、水1000ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、転換したところ、8.1gの4-ブロモーN,N-ジーピフェニリルアニリンが得られた。

[0052]

(3) 化合物 (H1) の合成

アルゴン気流下、上配(2)で得られた 4- プロモー N , N- ジービフェニリルアニリン 2g 、 N , N- ジフェニルアミン 1g (東京化成社製)、 t- プトキシナトリウム 0 . 5g (広島和社社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II) 0 . 1g (東京化成社製)及びキシレン 300 ミリリットルを入れ、 130 ℃にて 24 時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.6gの淡 首色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS(フィールドディソープションマススペクトル)分析により、 $C_{4\,2}$ $H_{3\,2}$ N_2 = $5\,6\,4$ に対し、m/z = $5\,6\,4$ の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニル-1-アミノーN, N-ジーピフェニリル-4-アミノベンゼン(H1) と同定した。

[0053]

実施例 2 (N, N-ジフェニル-4-アミノ-N', N'-ジーピフェニリル-4'-アミノ-1, 1'-ピフェニル (H 2) の合成)

(1) 4'-プロモーN, N-ジーピフェニリルー4-アミノー1, 1'-ピフェニルの 合成

冷却後、水1000ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽 出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物を カラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、9.1gの4 '一プロモーN、N-ジーピフェニリルー4-アミノー1.1'-ピフェニルが得られた 10

20

(2) 化合物 (H2) の合成

アルゴン気流下、上記(1)で得られた4'-プロモーN、N-ジービフェニリルー4- $T \in \mathcal{I} - 1$ 、1'ーピフェニル2、3g、N、Nージフェニルアミン1g (東京化成社 製)、tーブトキシナトリウム0.5g(広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィ ン)塩化パラジウム(II)0.1g(東京化成社製)及びキシレン 300ミリリット ルを入れ、 130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽 出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを滅圧下で濃縮し、得られた粗生成物を カラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.6gの淡 黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、CasHasN。 = 640 に対し、 m/z = 640 の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニルー4-アミノ-N', N'-ジービフェニリルー4'-アミノー1, 1'-ビフェニル (H 2) と同定した。 [0055]

実施例3 (N, N-ジフェニル-4-アミノ-N", N"-ジーピフェニリル-4"-ア ミノーpーターフェニル(H3)の合成)

(1) 4" - ブロモーN, N - ジービフェニリル - 4 - アミノ - p - ターフェニルの合成 アルゴン気流下、ジ-4-ピフェニリルアミン10g (東京化成)、4,4"-ジブロ モーn-ターフェニル12.1g (ランカスター社製)、t-プトキシナトリウム3g (広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II)0.5g(東京化成社製)及びキシレン 500ミリリットルを入れ、 130℃にて24時間反応 した。

冷却後、水1000ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽 出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で滯縮し、得られた粗生成物を カラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、9.4gの4 "-ブロモーN, N-ジービフェニリル-4-アミノ-p-ターフェニルが得られた。 [0056]

(2) 化合物 (H3)

アルゴン気流下、上記 (1) で得られた 4" - ブロモー N, N - ジービフェニリルー 4 -アミノーp-ターフェニル 2.6g、N, N-ジフェニルアミン 1g (東京化成社製) 、t-ブトキシナトリウム O. 5 g (広島和光社製)、ビス (トリフェニルホスフィン) 塩化パラジウム (II) 0. 1g (東京化成社製) 及びキシレン 300ミリリットルを 入れ、 130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽 出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物を カラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1,7gの淡 黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{5.4}H_{4.0}N_2=716$ に対し、 m/z = 716 の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニルー4-アミノーN", N" - ジービフェニリルー 4" - アミノー p - ターフェニル (H3) と同定した。

実施例4(N,N,N'ートリフェニルー4-アミノ-N'-(1-ナフチル)アミノー 1, 1'-ビフェニル (H4) の合成)

アルゴン気流下、実施例2の(1)で得られた4'ープロモーN, Nージービフェニリル -4-アミノ-1, 1'-ビフェニル2.3g、N-フェニル1-ナフチルアミン1g (東京化成社製)、t-ブトキシナトリウム0.5g(広島和光社製)、ビス(トリフェ ニルホスフィン)塩化パラジウム (II) O. 1g (東京化成社製)及びキシレン 30 0 ミリリットルを入れ、 130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽 出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物を

20

30

カラム精製し、トルエンで再結晶し、それを護取した後、乾燥したところ、2.0gの淡 黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{52}H_{38}N_2=690$ に対し、m/z=690 の主ビークが得られたので、N,N,N'-トリフェニルー4-アミノ-N'-(1-ナフチル) アミノー1,1'-ピフェニル(H4)と同定した。 【0058】

実施例 5 (N, N, N' - トリフェニル - 4 - アミノ - N' - (2 - ナフチル) アミノ -1, 1' - ピフェニル (H 5) の合成)

アルゴン気流下、実施例2の(1)で得られた4'-ブロモーN、Nージーピフェニリルー4ーアミノー1、1'ーピフェニル2.3g、Nーフェニル2ーナフチルアミン1g(東京化成社製)、tープトキシナトリウム0.5g(広島和光社製)、tス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(I I)0.1g(東京化成社製)及びキシレン 300ミリリットルを入れ、 130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸 マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.9gの淡 曽色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{52}H_{38}N_2=690$ に対し、m/z=690 の主ビークが得られたので、N,N,N'-トリフェニルー4-アミノーN'-(2-ナフチル) アミノー1,1'-ピフェニル (H5) と同定した。 $\begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$

実施例 6 (N, Nージフェニルー4ーアミノーN', N'ージー(4'ーメチルー4ーピフェニリル)ー4'ーアミノー1, 1'ーピフェニル(H 6)の合成)

(1) 4-ヨード-4'-メチルピフェニルの合成

反応後、室温まで冷却し、メタノール 850ミリリットルに攪拌下注入し、析出結晶を 建取し、得られた結晶をアセトニトリル 2.1リットルにて再結晶し、73g の4-ヨード-4'-メチルピフェニルを得た。

[0060]

(2) ジー (4'ーメチルー4ーピフェニリル) アミンの合成

100 ミリリットルの三つロフラスコに、上記(1)で得られた 4- ヨードー 4' ーメチルピフェニル 10.0 g 、 t- ブトキシナトリウム 4.32 g (和光純薬社製)、酢酸パラジウム 42 m g (和光純薬社製)を入れた。さらに攪拌子を入れ、フラスコの両側にラバーキャップをセットし、中央の口に選流用蛇管、その上に三方コックとアルゴンガスを封入した風船をセットし、系内を真空ポンプを用いて 3 回、風船内のアルゴンガスで置換した。

次に、脱水トルエン60ミリリットル(和光純素社製)、ペンジルアミン2.04ミリリットル(東京化成社製)、トリスー t-プチルホスフィン 169 μ リットル(アルドリッチ社製、2.22mo1/リットルトルエン溶液)をシリンジでラバーセプタムを通して加え、5分間室温で攪拌した。

次にフラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に 120℃まで昇温した。 7時間後、オイルバスからフラスコを外し反応を終了させ、アルゴン雰囲気下、12 時間放置した。

反応溶液を分液ロートに移し、ジクロロメタン 300ミリリットルを加えて沈殿物を溶解させ、飽和食塩水60ミリリットルで飛浄後、有機層を無水炭酸カリウムで乾燥した。 炭酸カリウムを濾別して得られた有機層の溶媒を留去し、視られた残渣にトルエン 20ミリリットル、エタノール40ミリリットルを加え、乾燥管を付けて80℃に加熱し、残滞を宗令に溶解した。その後12時間放置し、室温まで除冷することにより再結晶化さ

-

10

20

せた.

析出した結晶を濾別し、60℃で真空乾燥することにより6.12g のN, N-ジー(4'-メチル-4-ピフェニリル) -ベンジルアミンを得た。

300 ミリリットルの一口フラスコに、1.35g のN, N-ジー(4'ーメチルー 4-ピフェニリル)ーベンジルアミン、パラジウム-活性炭素135mg (和光純薬社製、パラジウム含有量10重量%)を入れ、クロロホルム 100ミリリットル、エタノール20ミリリットルを加えて溶解した。

次に、フラスコに攪拌子を入れた後、水素ガス 2 リットルが充填された風船を装着した三 方コックをフラスコに取り付け、真空ポンプを用いてフラスコ系内を水素ガスで 1 0 回置 換した。減った水素ガスを新たに充填し、水素ガスの容積を再び 2 リットルにした後、室 温で激しく溶液を攪拌した。 3 0 時間攪拌後、ジクロロメタン 1 0 0 ミリリットルを加 え、触線を減別した。

次に、得られた溶液を分液ロートに移し、炭酸水素ナトリウム飽和水溶液50ミリリットルで洗浄後、有機層を分別し、無水炭酸カリウムで乾燥した。濾過後、溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン50ミリリットルを加え、再結晶化させた。析出した結晶を濾別し、50℃で真空乾燥することにより0.83g のジー(4'ーメチルー4ービフェニリル)アミンを得た。

[0061]

(3) 化合物 (H6) の合成

アルゴン気流下、実施例2の(1)で得られた4'ープロモーN、Nージーピフェニリルー4ーアミノー1、1'ーピフェニル2.3g、上配(2)で得られたジー(4'ーメチルー4ーピフェニリル)アミン1.8g、tーブトキシナトリウム0.5g(広島和光社製)、ピス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II)0.1g(東京化成社製)及びキシレン 300ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物を カラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、2.3gの終 黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD - M S 分析により、C $_6$ $_2$ H $_4$ $_8$ N $_2$ $_2$ = 8 $_2$ 0 に対し、 m / $_2$ = 8 $_2$ 1 の主ビークが得られたので、N, N - ジフェニル- 4 - アミノ- N', N' - ジー (4' - メチル- 4 - ピフェニリル) - 4' - アミノ- 1, 1' - ピフェニル (H $_6$) と同定した。

[0062]

実施例 7

25mm×75mm×1.1mm 厚のITO透明電極付きガラス基板 (ジオマティック 柱製) をイソプロビルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を 30分間行なった。

得られた素子について電流密度 $1 \, \mathrm{mA/cm^2}$ における発光効率を測定し、その結果を表 $1 \, \mathrm{cm}$ す。

なお、化合物 (H1) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

[0063]

【化13】

[0064]

実施例8

実施例 7 において、化合物 (H1) の代わりに化合物 (H2) を用いた以外は同様にして 有機 E L 素子を作製した。

得られた素子について電流密度 $1 \, \mathrm{mA/c} \, \mathrm{m}^{\, 2}$ における発光効率を測定し、その結果を表1に示す。

ンストランス (日2) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の関口部を結晶が塞ぐことはなかった。

[0065]

実施例9

実施例 7 において、化合物(H 1)の代わりに化合物(H 3)を用いた以外は同様にして有機 E L 素子を作製した。

得られた素子について電流密度 $1\,\mathrm{m\,A/c\,m^2}$ における発光効率を測定し、その結果を表 $1\,\mathrm{cm}$ す。

なお、化合物 (H3) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着額の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

[0066]

実施例10

実施例 7 において、化合物 (H1) の代わりに化合物 (H4) を用いた以外は同様にして 有機E L 素子を作製した。

得られた素子について電流密度 $1 \, \mathrm{mA/cm^2}$ における発光効率を測定し、その結果を表 $1 \, \mathrm{に示す}$ 。

なお、化合物 (H4) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

[0067]

実施例11

実施例 7 において、化合物 (H 1) の代わりに化合物 (H 5) を用いた以外は同様にして 有機 E L 素子を作製した。 10

20

30

得られた素子について電流密度 $1 \, \mathrm{mA/cm^2}$ における発光効率を測定し、その結果を表 1に示す。

なお、化合物 (H5) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

[0068]

実施例12

実施例 7 において、化合物 (H1) の代わりに化合物 (H6) を用いた以外は同様にして 有機 E L 素子を作製した。

得られた素子について電流密度1mA/cm²における発光効率を測定し、その結果を表 1に示す。

なお、化合物 (H 6) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着額の閉口部を結晶が塞ぐことはなかった。

[0069]

比較例1

実施例7において、化合物(H1)の代わりに下記N,N,N',N'ーテトラ(4ービ フェニル)ージアミノビフェニレン(TBDB)を用いた以外は同様にして有機EL素子 を作製した。

得られた素子について電流密度1 m A / c m² における発光効率を測定し、その結果を表 1 に示す。

なお、TBDBは結晶性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部で結晶化し、連続的に成膜する ことができなかった。

[化14]



TBDB

[0070]

【表1】

表:

| 正孔輸送材料 | 発光効率(cd/A) | 発光色 |
|--------|----------------------------|---|
| H1 | 11.0 | 青 |
| H2 | 12.0 | 青 |
| НЗ | 11.2 | 青 |
| H4 | 12.2 | 青 |
| H5 | 12.1 | 青 |
| H6 | 12.3 | 青 |
| TBDB | 11.5 | 青 |
| | H1 H2 H3 H4 H5 | H2 12.0 H3 11.2 H4 12.2 H5 12.1 H6 12.3 |

[0071]

以上の結果から判るように、本発明の芳香族アミン誘導体を有機E L 素子の正孔輸送材料 に用いた場合、従来用いられている材料と同等の発光効率で発光させることが可能な上、 アモルファス性が高いことから、成腹時に蒸着線の開口部を塞ぐことがなく、連続的に素 子を成膜することができるため、有機E L 素子の製造歩留り向上に極めて有効であった。

[0072]

【発明の効果】

10

30

以上、詳細に説明したように、本発明の芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機EL素子は、高い発光効率を維持しつつ、分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留りを向上させることができる。